誘導ラマン散乱の量子論

誘導ラマン散乱の量子論

西川恭治（京大）
高野文彦（東教大）

（8月20日受理）

§1 はしがき

最近の非線形光学の一つの現象として、誘導ラマン散乱が大きな興味をもたれている。ところで、この現象についての理論は、光を古典的な波として取り扱つているものが多く、光子的な見方にたつた理論はあまり成功していないように見える。この現象では、レーザー光を入射光として用いているので、入射光も散乱光も非常に強いもので、古典的な波として考えることは、十分よい近似と考えてよい。それにもかかわらず、ここであえて光子説を考えたのは次のような理由による。第1に、波動的な考え方では、現象の説明は一応できているが、その分子的な素過程がどのようなものであるのか、吾々のような門外漢にはなかなかつかまえにくいことである。第2は、波動的な見方の古典論で説明できることが、量子論で説明できないはずはないと考えたことである。

もちろん、波動的な考え方で完全にうまく説明されてしまい、つけ加えるべき何ものもないものならば、今さら量子論などをもち出しても始まらないであろうが、現状は必ずしもそうではないようであるし、考え方も波動的なものとはかなりちがつたところもあるので、ちがつた立場から考えて見ることも意味あると思われる。さらに、結論としてもちがつものが出て来る可能性もあるので、光子的な見方にたつて量子論を考えてみたいわけである。ただし素人の悲しさで得られた式を眺めても実験事実とうまく結びつけることができず、また中には大分見当はずれのことを考えているかもしれないので、専門家の方々の御批判を仰ぎたいと思つている。

誘導ラマン散乱については、清水氏のすぐれたreview[1]もあり、吾々も大いに参考とさせて頂いたが、以下の議論に便利なように、吾々が考える問題点

を簡単に述べておこう。

適当な振動のスペクトルをもつた物質を考え、これに強いレザー光をあてる。物質系では、一たん高い電子状態に上つてレーザー光を吸収するが、その電子状態が元へ戻ると同時に振動のモードが励起され、振動数が入射光より小さくなつた光を放出する。これがふつうのラマン散乱であり、散乱光はストークス光と呼ばれるが、入射光が十分に強いと散乱光の誘導放出が起り、ストークス光の増幅がおきる。この範囲では、光を波と見ようが、粒子と見ようが、大した差はないが、物質によつては振動数が入射光より大きくなつた反ストークス光を放出する。この反ストークス光の増幅は、光子説ではなかなか説明できない。物質系が1つの光子を吸収して他の光子を放出し、振動の準位が1つ変化するという2光子過程で話を切つてしまえば、ストークス光が反ストークス光のどちらかが増幅されるだけで、他方は必ず減衰してしまう。両方とも増幅されることを説明するには、入射光の光子を2個吸収して、ストークス光と反ストークス光の光子を1個ずつ放出するという4光子過程を考えればよいが、次のような実験事実に合わない結果を与える。それは、レーザー光、ストークス光、反ストークス光の波数ベクトルをそれぞれ $\mathbf{k}_0$ ，$\mathbf{k}_S$ ，$\mathbf{k}_A$ とかき、振動数をそれぞれ ω_0 ，ω_S ，ω_A とかくと、上の4光子過程では

$$\mathbf{k}_S + \mathbf{k}_A = 2\mathbf{k}_0 \tag{1}$$

$$\omega_S + \omega_A = 2\omega_0 \tag{2}$$

という運動量とエネルギー保存則が成り立つている。(1)，(2)両式が、同時に成り立つたためには、ω_0 ，ω_S，ω_Aにおける屈折率の差を考慮に入れると、$\mathbf{k}_0$，$\mathbf{k}_S$ ，$\mathbf{k}_A$ のなす角が屈折率の差からきちんとさまつてしまう。すなわち、ストークス光も、反ストークス光もあるきまつた方向にしか出て来ないことになる。ところが、実際は反ストークス光の指光性はストークス光に比べるとずつとよく、大体(1)，(2)できまる方向に出て来ると考えてよいが（実はもつとくわしく見ると、反ストークス光も(1)，(2)が成り立つている方向では放出されず、暗環ができているのだが）、ストークス光はもつと大きく広がつており、(1)，(2)からきまる $\mathbf{k}_S$ の方向ではむしろ弱くなつている。このことは波動的な見方[2]をすれば、極め

て自然に説明されてしまう。一般に(1)のような条件を"phase matching"の条件と呼ぶ。

ところで4光子過程という考え方も、振動のモードがphononであるならばそう困つた事ではないようである。[3] すなわち、まず入射光がストークス光とphononを作り、そのできたphononと入射光とが反ストークス光を作ると考える。すると反ストークス光が強くなると、相手のphononを使いつくしてしまい、ストークス光ができにくくなるという説明のようである。しかし、この取り扱いは、何といつても簡単すぎ、波動的な取り扱いと比べて新しい事は何も云えないように思われる。また波動的な見方では、振動のモードがphononであろうと局在したものであろうと、余り大きな違いはないようであるのに、光子的な見方で差があるというのは気持が悪いことである。

吾々の目標は、光子的な見方から出発して、(1)ストークス光、反ストークス光が同時に増幅されうる事、(2)反ストークス光は非常に指向性が強く、これとphase matchingをしているストークス光は弱くなつている事、を説明することにある。

ところで、光子的な見方に立つて波動的な性質を出すには量子学的なコヒーレンスをとり入れる必要がある。今、考えている系の状態は、レーザー光、ストークス光、反ストークス光の光子数N_0, N_S, N_A, と分子系の振動状態とによつて指定されるとする。分子系の振動状態として、基底状態0と、ある分子jが励起した状態jとを考える*と、上に述べた2光子過程では

$$(0, N_0, N_S, N_A) \longleftrightarrow (j, N_0-1, N_S+1, N_A)$$
$$(0, N_0, N_S, N_A) \longleftrightarrow (j, N_0+1, N_S, N_A-1)$$

という遷移だけを考えるから、2つの状態の間のコヒーレンスは考えるが、それ以外の状態とのコヒーレンスは打ち切つている。4光子過程では、コヒーレントな状態の数は3つにふえるが、それではまだ不十分だと考えられる。一般に分子jだけに注目しても$(0, N_0, N_S, N_A)$という状態は

$$(j, N_0-2n+1, N_S+n, N_A+n-1) \quad \text{および}$$
$$(j, N_0-2n, N_S+n, N_A+n) \quad (n=1, 2, \cdots)$$

---

* ここでは振動のモードとしては局在したものを考るが、phononであつても結論には大きな差はない。

という状態とつながつており、** その間のコヒーレンスが重要である。他の分子の励起状態も考慮に入れれば、こういう状態の数はずつと増えるが、ここでは１つの分子についてのコヒーレンスだけをすべてとり入れる事にする。これは、多体問題で云えば、Random Phase Appnximation 相当する事で、この近似の範囲内でどういう事が結論されるかを調べてみる。結論としては、上にあげた２つの目標については大体良さそうであるし、その他にもいろいろと実験に結びつきそうな事が云えるが、それらの当否についてはよく分らないので、専門家の方々の御意見を伺いたいと思つている。

§2 ハミルトニアン

§1 に述べたように、吾々の対象とする系は、光子を１個吸収して他の光子を放出し、分子振動の状態が変るようなものである。簡単のために、振動の準位は２本だけを考え、* それをFermi operator で表わす。すなわち、j 番目の分子を基底状態に作る operatorをC_{j0}^{+}、消す operatorをC_{j0}とし、励起状態に作り又は消す operatorをC_{j1}^{+}, C_{j1}とする。これはFermi 演算子で、$C_{j\alpha} C_{j'\alpha'}^{+} + C_{j'\alpha'}^{+} C_{j\alpha} = \delta_{jj'}\ \delta_{\alpha\alpha'}$ という交換関係をみたす。ここで

$$b_j^{+} = C_{j1}^{+} C_{j0}, \quad b_j = C_{j0}^{+} C_{j1}$$

を作ると、b_j^{+}, b_j はj 番目の分子を励起したり元へ戻したりする operator で、その交換関係は

$$[b_j , b_j^{+}] \equiv b_j b_j^{+} - b_j^{+} b_j = C_{j0}^{+} C_{j0} - C_{j1}^{+} - C_{j1}^{+} C_{j1}$$

$$\equiv \nu_j$$

$$[b_j , b_{j'}^{+}] = 0 \qquad (j \neq j') \tag{3}$$

---

* これは振動の anharmonicityのため、準位間隔が一様でない時に対応する。準位間隔が一様のときは、b^{+}, b をBoson として考えればよい。結論には差はほとんどない。

** ただし、他の原因による光の減衰は無視している。

となる。このb_j^+・b_j を用いると、考えている系のハミルトニアンは、*

$$H = H_0 + H' \tag{4}$$

$$H_0 = \Sigma_{\mathbf{k}}\ \omega_{\mathbf{k}}\ a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}} + \epsilon\ \Sigma_j\ b_j^+ b_j \tag{5}$$

$$H' = \sum_j \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{k}'} \left[V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}\ e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot R_j^+}\ a_{\mathbf{k}}^+\ a_{\mathbf{k}'}\ b_j^+ + \text{h. c.} \right] \tag{6}$$

と書ける。(5)は自由な電磁場及び分子振動のハミルトニアンで、$a_{\mathbf{k}}^+$，$a_{\mathbf{k}}$は波数ベクトルが$\mathbf{k}$ の光子を作り又は消すoperatorで

$$[a_{\mathbf{k}},\ a_{\mathbf{k}'}^+] = \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \tag{7}$$

という交換関係をみたす。$\omega_{\mathbf{k}}$ は波数$\mathbf{k}$の電磁波の振動数で、ここでは $k=|\mathbf{k}|$ に比例すると考えておく。ϵは分子振動の励起エネルギーである。(6)が相互作用を表わし、上に述べた2光子過程だけを考えている。$V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ は一般に複雑な形をしているが、ここではそのくわしい形は余り問題にならない。

さて、ここで問題にするのはレーザー光がストークス光又は反ストークス光に変り、またその逆の過程であり、他の光の間の変換は考えないから、(6)で$\mathbf{k}$，$\mathbf{k}'$ のうちどちらか一方がレーザー光に対応するものだけを取ればよい。簡単のためレーザー光は$\mathbf{k}_0$ というただ一つの波数をもつているとすると、(6)は

$$H' \sim \sum_j \sum_{\mathbf{k}} \{ V_{\mathbf{k}\mathbf{k}_0}\ e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}_0)\cdot R_j}\ a_{\mathbf{k}}^+\ a_{\mathbf{k}_0}\ b_j^+ + V_{\mathbf{k}_0\mathbf{k}}\ e^{i(\mathbf{k}_0-\mathbf{k})\cdot R_j} a_{\mathbf{k}_0}^+\ a_{\mathbf{k}}\ b_j^+ + \text{h. c.} \}$$

となる。ここでレーザー光は充分強い事を考えると、$a_{\mathbf{k}_0}$，$a_{\mathbf{k}_0}^+$の絶対値は非

---

* 以下では$\hbar = 1$ とした単位をとる。

常に大きく、その間の非可換性は無視できる。ただし以下での取扱いでは Heisenberg の運動方程式を考えるから、$a_{\mathbf{k}_0}$, $a_{\mathbf{k}_0}^+$ は振動数 ω_0 で振動している事を考慮に入れねばならない。すなわち

$$a_{\mathbf{k}_0} \sim \sqrt{N_0}\ e^{i\omega_0 t},\quad a_{\mathbf{k}_0}^+ \sim \sqrt{N_0}\ e^{-i\omega_0 t}$$

とおく。但し、N_0はレーザー光の光子数で、これは時間によらないとする。すなわちここの近似はレーザー光が充分強くて、一部がストークス光などに変つても、レーザー光の強度はほとんど変化しないと考える。

以上のことを考慮に入れると、effective interaction として

$$\begin{aligned} H' \sim \sqrt{N_0}\ \sum_j \sum_{\mathbf{k}} \{ & V_{\mathbf{k}\mathbf{k}_0}\, e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}_0)\cdot\mathbf{R}_j}\, a_{\mathbf{k}}^+\, e^{i\omega_0 t}\, b_j^+ \\ & + V_{\mathbf{k}_0\mathbf{k}}\, e^{i(\mathbf{k}_0-\mathbf{k}).\mathbf{R}_j}\, a_{\mathbf{k}}\, e^{-i\omega_0 t} b_j^+ \\ & + \text{h. c.} \} \end{aligned}$$

を考えればよい事になる。ここで $\mathbf{k}-\mathbf{k}_0 \equiv \mathbf{K}$ と書き、

$$\sqrt{N_0}\ V_{\mathbf{k}\mathbf{k}_0} \equiv V_{\mathbf{K}},\quad \sqrt{N_0}\ V_{\mathbf{k}_0\mathbf{k}} = V_{\mathbf{K}}^* \tag{8}$$

$$a_{\mathbf{k}}^+\ e^{i\omega_0 t} \equiv a_{\mathbf{K}}^+,\ e^{-i\omega_0 t} \equiv a_{\mathbf{K}} \tag{9}$$

とおくと、

$$H' = \sum_j \sum_{\mathbf{K}} \{ V_{\mathbf{K}}\, e^{i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j}\, a_{\mathbf{K}}^+ + V_{\mathbf{K}}^*\, e^{-i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j}\, a\mathbf{K} \} \times (b_j^+ + b_j) \tag{10}$$

となる。以下は(5)と (10) を加えた全ハミルトニアン(4)を用いて、$a_{\mathbf{K}}$, $a_{\mathbf{K}}^+$ の運動方程式を作り、その運動が不安定になる条件を求めれば、それがその波数の光の増幅条件に対応する。

§3　永年方程式とその解

ハミルトニアンが与えられると、任意の物理量A(t)の運動は、Heisenberg

方程式

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\partial A}{\partial t} + i[A, H] \tag{11}$$

で定まる。今、A(t)として変換(9)をほどこした後の光子の演算子$a_{\mathbf{K}}$を選ぶと、簡単な計算によつて次の式がえられる。

$$\begin{aligned}\frac{da_{\mathbf{K}}}{dt} &= -i\omega_0 a_{\mathbf{K}} + i[a_{\mathbf{K}}, H] \\ &= i(\omega_{\mathbf{K}} - \omega_0) a_{\mathbf{K}} \\ &\quad + iV_{\mathbf{K}} \sum_j e^{i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j} (b_j^* + b_j)\end{aligned}$$

或はFourier 変換

$$A(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\Omega\, e^{i\Omega t} A(\Omega) \tag{12}$$

を行つて

$$(\Omega - \Omega_{\mathbf{K}}) a_{\mathbf{K}} = V_{\mathbf{K}} \sum_j e^{i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j} (b_j^+ + b_j) \tag{13}$$

但し

$$\Omega_{\mathbf{K}} \equiv \omega_k - \omega_0 \tag{14}$$

とおいた。同様にして、他のoperatorsについて

$$(\Omega + \Omega_{\mathbf{K}}) a_{\mathbf{K}}^+ = -V_{\mathbf{K}}^* \Sigma_j\, e^{-i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j} (b_j^+ + b_j) \tag{15}$$

$$\begin{aligned}(\Omega - \epsilon) b_j = \sum_{\mathbf{K}'} \{ & V_{\mathbf{K}'} e^{i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'}^+ \\ & + V_{\mathbf{K}'}^* e^{-i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'} \}\end{aligned} \tag{16}$$

$$\begin{aligned}(\Omega + \epsilon) b_j^+ = -\sum_{\mathbf{K}'} \{ & V_{\mathbf{K}'} e^{i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'}^+ \\ & + V_{\mathbf{K}'}^* e^{-i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j} a_{\mathbf{K}'} \}\end{aligned} \tag{17}$$

が得られる。(12) (15) (16) (17) から b_j, b_j^+ を消去すると

$$(\Omega-\Omega_{\mathbf{K}})a_{\mathbf{K}}=-V_{\mathbf{K}}\frac{2\epsilon}{\Omega^2-\epsilon^2}\sum_j\sum_{\mathbf{K}'}e^{i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j}\nu_j\times\{V_{\mathbf{K}'}e^{i\mathbf{K}'.\mathbf{R}_j}a_{\mathbf{K}'}^{+}+V_{\mathbf{K}'}^{*}e^{-i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j}a_{\mathbf{K}'}\} \tag{18}$$

$$(\Omega+\Omega_{\mathbf{K}})a_{\mathbf{K}}^{+}=-V_{\mathbf{K}}^{*}\frac{2\epsilon}{\Omega^2-\epsilon^2}\sum_j\sum_{\mathbf{K}'}e^{-i\mathbf{K}.\mathbf{R}_j}\nu_j\times\{\text{上　と　同　じ}\} \tag{19}$$

となる。但し ν_j は(3)で定義される。ここまでは厳密である。

これから先に進むに当つて、多体問題でよく使われるRandom Phase Approximation (R. P. A.) を行う。これは数学的には

$$\sum_j e^{i(\mathbf{K}+\mathbf{K}').\mathbf{R}_j}\nu_j=\bar{\nu}N\,\delta_{\mathbf{K}+\mathbf{K}'} \tag{20}$$

と表わされる。但しNは分子の数で、$\bar{\nu}$ は ν_j の適当な平均値である。この近似は、今の場合、次の二つの内容を持つている。

1) 演算子 ν_j を適当な平均値 $\bar{\nu}$ でおきかえる。

2) 分子についての和を取る事によつて、$\mathbf{K}+\mathbf{K}'=0$ という特定の位相関係をみたすもののみを拾い出す。

1) は各分子が励起されている確率がまわりの分子の状態によらないという事で、いわば分子の状態の間のコヒーレンスを無視した事に対応する。2) は、その条件の下で分子がrandom に分布していればexact に成り立つ。又、固体のように規則正しい配列をしている時でも、Umklapp process を無視すれば成り立つ。

(18), (19) に (20) を適用すると、$a_{\mathbf{K}}$ と $a_{-\mathbf{K}}^{+}$ との間に次の線型連立方程式がえられる。

$$\{(\Omega-\Omega_{\mathbf{K}})(\Omega^2-\epsilon^2)-2\epsilon N\bar{\nu}|V_{\mathbf{K}}|^2\}a_{\mathbf{K}}$$

$$=2\epsilon N\bar{\nu}V_{\mathbf{K}}V_{-\mathbf{K}}a_{-\mathbf{K}}^{+}$$

$$\{(\Omega+\Omega_{-\mathbf{K}})(\Omega^2-\epsilon^2)+2\epsilon N\bar{\nu}|V_{-\mathbf{K}}|^2\}a_{-\mathbf{K}}^{+}$$

$$=2\epsilon N\bar{\nu}V_{\mathbf{K}}^{*}V_{-\mathbf{K}}^{*}a_{\mathbf{K}}$$

今、$\Omega_{\mathbf{K}}>0$ とすると、$a_{\mathbf{K}}$ は反ストークス光の消滅演算子、$a_{-\mathbf{K}}^{+}$ はストーク

ス光の生成演算子に対応する。(21) の右辺はこの両者の coupling を表わし、その coupling の強さ(は入射レーザー光の強さ)に比例する(8)式参照)。又、両者の波数の間には、(1)の phase matching の条件が exact に成り立つている。

(21) が montrivialな解をもつ条件から、次の永年方程式がえられる。

$$(\Omega^2-\epsilon^2)\{(\Omega^2-\epsilon^2)(\Omega-\Omega_K)(\Omega+\Omega_{-K}) + 2\epsilon\,[U_{-K}(\Omega-\Omega_K)-U_K(\Omega+\Omega_{-K})]\}=0 \tag{22}$$

ここに

$$U_K = N\bar{\nu}\,|V_K|^2 \tag{23}$$

今、$\epsilon \gg |\Omega-\epsilon| \neq 0$ とし、

$$\Omega-\epsilon \equiv x,\quad \Omega_K+\Omega_{-K} \equiv \Lambda,$$

$$\epsilon+\Omega_{-K} \equiv \delta,\qquad U_{-K}-U_K \equiv \Delta \tag{24}$$

とおくと、(22) は

$$x(x+\delta)(x-\Lambda+\delta)+\Delta x = \Lambda U_{-K}-\delta\Delta \tag{25}$$

という3次方程式に帰着される。この方程式は、一般に3つの根をもつが、係数の関係から、その中2根が互いに共役な複素根となる事がある。このような時に、(12) から分るように、負の虚部をもつ根が不安定モードを与える。そしてその不安定モードの実部及び虚部が、励起される散乱光の振動数及び成長率を与える。又 (21) から、その不安定モードに対応するストークス光と反ストークス光との振巾の比 $|a^+_{-K}/a_K|$ が求められる。

具体的な計算に入る前に、二つの注意をしておく。

まず第一に、上の議論から明らかなように、もしストークス光が励起されればば、反ストークス光も同時に励起される(逆も又成り立つ) そしてその振動数は、(2)の関係を exact にみたしている。しかし、ここできまる ω_S, ω_A は、最早単純な波動理論できまる電磁波の振動数ではなく、強い一次レーザー光を

媒介とするストークス光と反ストークス光の間の coupling の 結果生れた新しい波の振動数である。従つて(2)の条件が課せられたからと云つて、散乱光の励起条件には、4光子過程の理論が要求するような強い角度制限は現われない。これは、別の見方をすれば、強い輻射場の下で屑折率の著しい異方性が現われたのだと考える事ができる。

第二に、ストークス光と反ストークス光とは、常に同じ成長率で成長するが、両者の振巾は一般に異り、しかもその比は鋭い角度依存性をもつている事が後に示される。そのためにストークス光と反ストークス光とでは、著しく異なつた角度分布を与える可能性がある。

さて、散乱光の励起条件を調べるには

$$x = \xi + i\eta$$

とおいて、(25) に代入し、実部及び虚部に対する方程式を立てて有限な虚部が出る条件を求めればよい。単純な計算から

$$-8\xi^3 + 8(\Lambda-2\delta)\xi^2 - 2\{(\Lambda-2\delta)^2 + \delta(\delta-\Lambda) + \Delta\}\xi$$

$$= \delta(\Lambda^2 + \Delta + 2\delta^2) + \Lambda(U_{-k} - 3\delta^2 - \Delta) \qquad (26)$$

$$\eta^2 = 3\xi^2 - 2(\Lambda-2\delta)\xi + \delta(\delta-\Lambda) + \Delta \qquad (27)$$

がえられる。(27) が正である事が励起条件である。係数の間の種々の組合わせによつていくつかの励起条件が出て来るが、以下では i) $\bar{\nu} > 0$, ii) $\delta \simeq 0$ を仮定して、典型的な3つの場合を考察する。i) は分子状態に population inversion が起っていないという仮定で、この条件の下では $U_{\pm K} > 0$ となる。又 ii) は、波動領域に対する制限で、考えているストークス光の裸の振動数が、

$$\omega_{k_0 - K} = \omega_0 - \varepsilon$$

という保存則を近似的に満たしているという条件である。$\bar{\nu} > 0$ では、この条件をみたす光は反ストークス光との相互作用がなくても成長するので、この

条件は、weak coupling の時最も早く励起する波数領域に話を限つた事に相当する。この2つの条件の下での様々な場合とは、Λのいろいろな値という事に対応する。Λは$K/k_0 \ll 1$（前方散乱）では

$$\Lambda \simeq ck_0 \left(\frac{K}{k_0}\right)^2 (1-\cos^2\theta)$$

$$(\cos\theta \equiv \mathbf{K}\cdot\mathbf{k}_0/Kk_0)$$

と書かれるので、Λのいろいろな値とは角θのいろいろな値という事に対応する。別の見方をすれば、　Λの大小は、ストークス光と反ストークス光との間の相対的なcoupling の強さの大小に関係している（（21）式参照）。

$$\text{Case 1)} \quad \Lambda^2 > U_{-K}, \quad \Lambda^2 \gg |\Delta|, \delta^2 \tag{29}$$

これはθの大きい領域、或はweak coupling の場合に対応する。この時は(26)，(27) ととくと

$$\xi \simeq -\frac{\delta}{2} - \frac{U_{-K}}{2\Lambda} \tag{30}$$

$$\eta \simeq \sqrt{U_{-K} + \frac{3U^2_{-K}}{4\Lambda^2} - \frac{\delta^4}{4}} \tag{31}$$

となり、励起条件は

$$U_{-K} + \frac{3}{4}\frac{U^2_{-K}}{\Lambda^2} > \delta^2/4 \tag{32}$$

で与えられる。今特に$U_{-K} \ll \Lambda^2$　とすると、励起条件、即ち励起する波の波数領域は$|\delta| < 2\sqrt{U_{-K}}$で定まり、又成長率は$\sqrt{U_{-K} - \delta^2/4}$となる。これらはいずれも相互作用の平方根、従つて一次レーザー光の強さの平方根に比例するが、角度依存性はあまり示さない。一方、ストークス光と反ストークス光との振巾の比は、大体

$$|a_K/a^+_{-K}| \simeq \sqrt{U}/\left(\Lambda - \frac{3}{4}\delta + \frac{U}{2\Lambda}\right) \tag{33}$$

となり、$\Lambda^2 \gg U$ ではストークス光の方がはるかに強くなる。しかしこの比も角 θ が小さくなると共に θ^{-2} で大きくなり、又一次レーザー光の振巾を大きくすればその平方根に比例して増大する。

$$\text{Case 2)} \quad U_{-K} \gg \Lambda^2 \gg |\Delta|,\ \delta^2 \tag{34}$$

この時には

$$\xi \simeq -(\Lambda U_{-K})^{1/3}/2 \tag{35}$$

$$\eta \simeq \frac{\sqrt{3}}{2}(\Lambda U_{-K})^{1/3} \tag{36}$$

となり、成長率は一次レーザー光の強さの $1/3$ 乗、又角 θ の $\left(-\frac{2}{3}\right)$ 乗に比例する。又この時のストークス光と反ストークス光との強度の比は

$$|a_K/a^+_{-K}| \simeq 1$$

となり、従つてストークス光は弱く、反ストークス光は比較的強くなる。(34)の条件は θ で云えば比較的小さい値の領域に対応しており、この事から反ストークス光の角度分布はストークス光に比べてかなりせまくなる事が期待される。

$$\text{Case 3)} \quad |\Delta| \gg \Lambda^2,\ \delta^2 \tag{37}$$

この時は

$$\xi \simeq -\frac{\delta}{2} - \frac{\Lambda U_{-K}}{2\Delta} \tag{38}$$

$$\eta \simeq \sqrt{\Delta} \tag{39}$$

となり、成長条件は $\Delta > 0$ となる。ところで Δ の正負は物質に固有のもので、従つて (39) は、物質によつては成長するものとしないものとがある事を意味する。一方 (37) は非常にせまい角度領域を表わしており、結局これは、物質

によつてある特定の方向に細い暗環が現われる可能性を示唆している。

以上3つの場合の他にもいくつかの励起条件が考えられるが、それらはいずれも上の結果に大きな変更を与えるものではない事が調べられている。

我々の方法では、これら各々の場合について、ストークス光、反ストークス光のline shape や巾や角度分布等が調べられるが、それらについては後の機会に詳しく考察する事にする。

§4 まとめ

我々は誘導ラマン散乱を完全に量子力学的な見地から説明しようと試みた。まずeffective interactionとして2光子過程に相当するものをえらび、その中一方の光子を入射レーザー光に限つた。更にレーザー光は非常に強いので、その振巾は一定と考えた。これは、§2 にも述べたように、散乱光の増巾のレーザー光への反作用を無視した事に対応するが、この事はそう悪い近似ではないと考えられる。こうしてえられた簡単なハミルトニアン(4)(5)(10) に基いて、光と物質との運動を調べたわけであるが、その際RPA という近似をした。この近似の範囲内でも、ストークス光と反ストークス光とのcouplingは完全に残つており、ストークス光、反ストークス光のコヒーレンスは全て考慮に入つている。この近似の結果、normal modeの振動数と成長率をきめる方程式は非常に簡単になり、3次方程式 (25) で与えられる。我々は、振動準位のradiationless dampingとかcavity lossなどをexplicitには考慮していないので、増巾が起きるためのレーザー光の threshold については何も議論しなかつたが、これらを現象論的に入れればthreshald がえられる事は、他の理論と全く同様である。従つて議論は、レーザー光がthreshold をこえたものとして行われ、その後の行動を調べるわけであり、それには上の3次方程式を調べて、いろいろな場合にどのような事が起きるかを調べればよいのである。ここではまず非常に簡単な場合についてだけ考え、次のような結論がえられた。

1) ストークス光と反ストークス光は常に同時に増巾される。その増巾率は両方の光について同じであり、ただ振巾の比が、方向や振動数によつて異つているだけである。

2） この振巾比を調べると、大部分の領域では反ストークス光はストークス光に比べるとずつと弱く、ごく限られた領域でのみ2つの光の振巾は同じ程度になる。すなわち、反ストークス光は実際に鋭い指向性をもつている。この領域では、ストークス光は他の領域に比べると相対的に弱くなつていて、ストークス光の暗環ができる事が期待される。

3） 上の領域でも、運動量と振動数のmatching (1), (2*)が正確に成り立つていると、物質によつては、ストークス光、反ストークス光共に増巾されなくなる事がある。すなわち、反ストークス光にも暗環ができる物質がありうる。

4） 一般に、増巾されるストークス光、反ストークス光の成長率、指向性、巾は、入射レーザー光の強度に依存している。この保存性については、後の機会に詳しく調べるつもりである。

これらの結果は、すべてBloembergen-Shen[4]がすでに求めたものである。これは、我々が、Bloembergen-Shenの結果に合つたような結果をまずひき出したからであつて、我々の方程式はもつとちがつた結果も含んでいると期待している。従つて、ここの理論が光子的見方をした特徴がどこに現われるかについては、まだ答えられないが、ここでの考え方を波動的な見方をして対応をつける事はそう簡単なことではないと思われる。いずれにせよ、我々の理論は、今までの理論とちがつた特徴をもつていると期待し、どのようなちがつた結論が導き出せるかを調べて行くつもりである。

ここではストークス光、反ストークス光だけを考えたが、高次のharmonicsを考慮に入れる事も可能であるし、更に非線形光学の他の現象に応用する事もできると信じている。まだ勉強を始めてから数ケ月しかたつていないため、勉強不足で実験事実も余り知らないし、従つてどのようなことを説明すべきか分らないので、以上のような発展については、すべて後の

---

*) ここでいう振動数とは、ストークス光と反ストークス光とのcouplingのない場合の〝裸〟の振動数であり、実際に放出される光の振動数は、前節のξで与えられ、これについては振動数のmatchingは常に成り立つている事に注意せねばならない。

機会にゆずるが、その前に専門家の方々の御批判を受けたいと思つている。

最後に、この問題の契機を作り、有益な議論をして下さつた、京大物性理論の非線形現象研究グループの方々に、特に富田和久、長谷川洋両氏に感謝の意を表したいと思います。さらに、いろいろと有益な議論をして下さつた東大物研豊沢豊氏に感謝します。また、この研究は、高野が学術振興会の流動研究員として京大に滞在中になされたもので、学術振興会に対して、および京大物性理論の皆様のhospitalityに感謝します。

文　　献

1) 日本物理学会編「量子エレクトロニクス」12章（朝倉書店、1965）
2) E. Garmire et. al, Phys. Rev. Letters 11, 160 (1963)
3) H. J. Zeiger et. al, Phys. Rev. Letters 11, 419 (1963)
4) N. Bloembergen, Y. R. Shen, Phys. Rev. Letters 12, 504 (1964); Phys. Rev. 137 A, 1787 (1965)